

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
22. September 2005 (22.09.2005)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 2005/087900 A1**

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: **C10L 1/02**,  
1/22, 1/18, 10/00

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2005/002210

(22) Internationales Anmeldedatum:  
3. März 2005 (03.03.2005)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
10 2004 011 821.3 11. März 2004 (11.03.2004) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme  
von US): **COGNIS DEUTSCHLAND GMBH & CO.KG**  
[DE/DE]; Rheinpromenade 1, 40789 Monheim (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **RÖDER, Jürgen**  
[DE/DE]; Einsteinstr. 6, 40589 Düsseldorf (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für  
jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL,  
AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,

CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES,  
FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE,  
KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD,  
MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG,  
PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ,  
TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA,  
ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für  
jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW,  
GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG,  
ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU,  
TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK,  
EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL,  
PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI,  
CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

**Erklärung gemäß Regel 4.17:**

— *Erfindererklärung (Regel 4.17 Ziffer iv) nur für US*

**Veröffentlicht:**

— *mit internationalem Recherchenbericht*

*Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Ab-  
kürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Co-  
des and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der  
PCT-Gazette verwiesen.*

(54) Title: FUEL COMPOSITIONS

(54) Bezeichnung: TREIBSTOFFZUSAMMENSETZUNGEN

(57) Abstract: The invention relates to fuel compositions which are devoid of alkoxyated compounds, comprising at least 90 wt. % hydrocarbon-based fuel, 0.5 - 9 wt. % dry ethanol and 0.1 - 5 wt. % of an additive which is a reaction product arising from the reaction of di- or trialkanolamines with vegetable oils or alkyl esters of fatty acid mixtures made of vegetable oils.

(57) Zusammenfassung: Vorgeschlagen werden Treibstoffzusammensetzungen, frei von alkoxylierten Verbindungen, enthaltend mindestens 90 Gew.-% eines Treibstoffs auf Kohlenwasserstoffbasis, 0,5 bis 9 Gew.-% trockenem Ethanol und 0,1 bis 5 Gew.-% eines Additives bei dem es sich um ein Umsetzungsprodukt aus der Reaktion von Di- oder Trialkanolaminen mit Pflanzenölen oder mit Alkylestern der Fettsäuregemische aus Pflanzenölen handelt.



WO 2005/087900 A1

# Treibstoffzusammensetzungen

## Gebiet der Erfindung

Die vorliegende Erfindung betrifft Treibstoff/Ethanolmischungen, die als Additive Umsetzungsprodukte aus der Reaktion von Di- oder Trialkanolaminen mit Pflanzenölen enthalten. Weiterhin betrifft die Erfindung ein Verfahren zur Herstellung von Dieselöl/Ethanolmischungen sowie die Verwendung der Umsetzungsprodukte als Lösungsvermittler für ethanolhaltigen Dieseltreibstoff.

## Stand der Technik

In Treibstoffen auf Kohlenwasserstoffbasis, also z.B. Gasölen, Heizölen, Benzin, Diesel, Kerosin etc., werden zahlreiche Additive eingesetzt. So sind neben Zusätzen zum Korrosionsschutz und zur Schmierfähigkeit auch Fließverbesserer oder Verbindungen bekannt, die die Emissionswerte von Gasen wie CO, CO<sub>2</sub> oder NO<sub>x</sub> verbessern.

Die internationale Patentanmeldung WO 98/17745 beschreibt eine Zubereitung enthaltend Fettsäurediethanolamide, Alkoholethoxylate und Fettsäureethoxylate als Additive für Kraftstoffe. Die internationale Patentanmeldung WO 02/088280 beschreibt Zubereitungen enthaltend Ölsäurealkanolamide und alkoxylierte Ölsäure als Additive für Kraftstoffe.

In der internationalen Anmeldung WO02/38707 werden stickstoffhaltige Additive als Solubilisierungshilfsmittel für Diesel/Ethanolgemische genannt.

Während diese Art von Zubereitungen als Additive in Dieselmotorkraftstoffen die Emission der Gase reduzieren und in geringen Konzentrationen einsetzbar sind, gibt es weiterhin einen Bedarf an Kraftstoffadditiven, die die Emission der Schadstoffgase verringern ohne die Eigenschaften des Kraftstoffes zu beeinträchtigen. Die Verwendung von Zubereitungen enthaltend mehrere Komponenten oder die Verwendung von kostenintensiven Rohstoffen und/oder aufwendigen Aufbereitungsverfahren sollte nach wirtschaftlichen Gründen möglichst vermieden werden.

Es war daher die Aufgabe der vorliegenden Erfindung, ein Additiv zu finden, welches bereits in geringen Mengen eine ausreichende Verringerung der Emissionswerte von Schadstoffgasen ermöglicht und kostengünstig in der Herstellung und in den Rohstoffpreisen ist. Außerdem

sind solche Additive gewünscht, die auf Basis von nachwachsenden Rohstoffen erhalten werden können.

Die Additive sollten des weiteren Tenside darstellen, welche es ermöglichen, die Homogenität von Dieselmischungen enthaltend Alkohole zu erhöhen indem die Löslichkeit des Alkohols, insbesondere des häufig verwendeten Ethanol im Dieselmisch erhöht wird.

Überraschenderweise wurde nun gefunden, dass durch Verwendung von Umsetzungsprodukten der Reaktion von Di- oder Trialkanolaminen mit Pflanzenölen oder mit Alkylestern der Fettsäuregemische aus Pflanzenölen eine ausreichende Lösung von Ethanol in Treibstoffen, vorzugsweise in Dieselmisch erzielt werden kann.

### **Beschreibung der Erfindung**

Ein erster Gegenstand der vorliegenden Anmeldung betrifft daher Treibstoffzusammensetzungen, frei von alkoxylierten Verbindungen, enthaltend mindestens 90 Gew.-% eines Treibstoffs auf Kohlenwasserstoffbasis, 0,5 bis 9 Gew.-% trockenem Ethanol und 0,1 bis 5 Gew.-% eines Additives bei dem es sich um ein Umsetzungsprodukt aus der Reaktion von Di- oder Trialkanolaminen mit Pflanzenölen oder mit Alkylestern der Fettsäuregemische aus Pflanzenölen handelt.

Unter Treibstoffen werden im Rahmen dieser Anmeldung alle energieliefernden Betriebsstoffe, deren freie Verbrennungsenergie in mechanische Arbeit umgesetzt wird, verstanden. Dazu zählen alle Arten von bei Raumtemperatur und Normaldruck flüssigen Motor- und Flugkraftstoffe. Motorkraftstoffe, z.B. für PKW- oder LKW-Motoren, enthalten in der Regel Kohlenwasserstoffe, z.B. Benzin- oder höhersiedende Erdöl-Fraktionen. Bevorzugt handelt es sich bei den erfindungsgemäßen Treibstoffen um Dieselmisch, insbesondere um Diesel enthaltend Biodiesel.

Dieseltreibstoffe werden aus Gasöl durch Cracken oder aus Teeren, die bei der Schwelung von Braun- oder Steinkohle gewonnen werden, erhalten. Dieseltreibstoffe sind schwer entflammare Gemische von flüssigen Kohlenwasserstoffen, die als Kraftstoffe für Gleichdruck- oder Brennermotoren (Dieselmotoren) verwendet werden und überwiegend aus Paraffinen mit Beimengungen von Olefinen, Naphthenen und aromatischen Kohlenwasserstoffen bestehen. Ihre Zusammensetzung ist uneinheitlich und hängt besonders von der Herstellungs-Methode ab. Übliche Produkte haben eine Dichte zwischen 0,83 und 0,88 g/cm<sup>3</sup>, einen Siedepunkt zwischen 170 und 360 °C und Flammpunkte zwischen 70 und 100 °C. Vorzugsweise enthalten die erfindungsgemäßen Treibstoffe Dieselmisch oder bestehen aus Dieselmisch. Darunter fällt

auch der sogenannte Biodiesel, also ein Fettsäuremethylester, vorzugsweise Rapsölfettsäuremethylester der erfindungsgemäß bevorzugt im Diesel enthalten ist.

Bei dem trockenem Ethanol handelt es sich entweder um handelsübliches „absolutes Ethanol“ mit einem definiertem Wassergehalt der je nach Handelsprodukt variieren kann oder um Ethanol, welches über allgemein bekannte Trockenmittel wie beispielsweise Natrium getrocknet wird, bis vorzugsweise zu einem Wassergehalt von kleiner 0,5 Volumen-% Wasser. Eine Trocknung über Molekularsieb kann gegebenenfalls angeschlossen werden.

Die erfindungsgemäßen Treibstoffe zeichnen sich dadurch aus, dass sie als Additive nur das Umsetzungsprodukt aus der Reaktion von Di- oder Trialkanolaminen mit Pflanzenölen oder mit Alkylestern der Fettsäuregemische aus Pflanzenölen, enthalten und das somit keine teuren und aufwendigen Mischungen unterschiedlicher Einzelsubstanzen notwendig sind. Es handelt sich also um ein sehr kostengünstiges Produkt, da das Umsetzungsprodukt neben einer Filtration keiner weiteren Aufarbeitung unterzogen werden muss und dadurch kosten- und zeitintensive Aufarbeitungsschritte entfallen. Die Hauptumsetzungsprodukte aus der Reaktion von Di- oder Trialkanolaminen mit Pflanzenölen oder mit Alkylestern der Fettsäuregemische aus Pflanzenölen stellen Alkanolamide der in den Ölen enthaltenden Fettsäuren dar. Da es erfindungsgemäß nicht erforderlich ist, diese Alkanolamide von nicht umgesetzten Rohstoffen wie Alkanolamine, teilweise umgesetzten Rohstoffen wie beispielsweise Di- oder Monoglyceriden, weiteren Reaktionsprodukten wie Glycerin bzw. Ethanol oder Methanol abzutrennen, sondern nur eine Filtration zur Abtrennung nichtlöslicher Bestandteile notwendig ist, handelt es sich um sehr kostengünstige Umsetzungsprodukte.

Besonders bevorzugt im Sinne der Erfindung sind solche Treibstoffzusammensetzungen, die Additive enthalten, die Umsetzungsprodukte von Di- oder Trialkanolaminen mit Pflanzenölen darstellen, bei denen die Pflanzenöle Fettsäureester enthalten, die einfach oder mehrfach ungesättigte Alkylreste mit 11 bis 21 C-Atomen enthalten. Besonders bevorzugt sind solche Fettsäureester mit einfach ungesättigten Alkylresten mit 17 C-Atomen.

Ungesättigte Vertreter sind beispielsweise Laurolein-, Myristolein-, Palmitolein-, Petroselin-, Öl-, Elaidin-, Ricinol-, Linol-, Linolaidin-, Linolen-, Gadolein-, Arachidon und Erucasäure. Auch Mischungen der Methylester dieser Säuren sind geeignet. Besonders bevorzugt ist die Verwendung von Fettsäureestern die Fettsäuren aus der Gruppe Methyloleat, Methylpalmitat, Methylstearat und/oder Methylpelargonat enthalten.

Die erfindungsgemäßen Treibstoffzusammensetzung enthalten bevorzugt Additive die Umsetzungsprodukte von Di- oder Trialkanolaminen mit Pflanzenölen darstellen, bei denen die Pflanzenöle ausgewählt sind aus der Gruppe, die gebildet wird von Sojaöl, Rapsöl, Sonnenblumenöl, Erdnussöl, Leinöl, Olivenöl, Ricinusöl, Palmöl und Distelöl. Erfindungsgemäß besonders bevorzugt ist die Umsetzung von Sojaöl, Sonnenblumenöl oder Rapsöl und insbesondere die Umsetzung von Sojaöl.

Es handelt sich bei den Pflanzenölen im Wesentlichen um Triglyceridmischungen, wobei das Glycerin mit länger-kettigen Fettsäuren jeweils vollständig verestert ist.

Erdnussöl enthält durchschnittlich (bezogen auf Fettsäure) 54 Gew.-% Ölsäure, 24 Gew.-% Linolsäure, 1 Gew.-% Linolensäure, 1 Gew.-% Arachinsäure, 10 Gew.-% Palmitinsäure, sowie 4 Gew.-% Stearinsäure. Der Schmelzpunkt beträgt 2 bis 3 °C.

Leinöl enthält typischerweise 5 Gew.-% Palmitin-, 4 Gew.-% Stearin-, 22 Gew.-% Öl-, 17 Gew.-% Linol- und 52 Gew.-% Linolensäure. Die Iodzahl liegt im Bereich von 155 bis 205, Die Verseifungszahl ist 188 bis 196 und der Schmelzpunkt liegt bei etwa - 20 °C.

Olivenöl enthält überwiegend Ölsäure. Palmöl enthält als Fettsäurekomponenten etwa 2 Gew.-% Myristin-, 42 Gew.-% Palmitin-, 5 Gew.-% Stearin-, 41 Gew.-% Öl-, 10 Gew.-% Linolsäure.

Rapsöl enthält als Fettsäurekomponenten typischerweise etwa 48 Gew.-% Erucasäure, 15 Gew.-% Ölsäure, 14 Gew.-% Linolsäure, 8 Gew.-% Linolensäure, 5 Gew.-% Icosensäure, 3 Gew.-% Palmitinsäure, ~~2 Gew.-% Hexadecensäure und 1 Gew.-% Docosadiensäure.~~ Rapsöl aus neuer Züchtung ist bezüglich der ungesättigten Anteile angereichert. Typische Fettsäureanteile sind hier Erucasäure 0,5 Gew.-%, Ölsäure 63 Gew.-%, Linolsäure 20 Gew.-%, Linolensäure 9 Gew.-%, Icosensäure 1 Gew.-%, Palmitinsäure 4 Gew.-%, Hexadecensäure 2 Gew.-% und Docosadiensäure 1 Gew.-%.

Ricinusöl besteht zu 80 bis 85 Gew.-% aus dem Glycerid der Ricinolsäure, daneben sind zu etwa 7 Gew.-% Glyceride der Öl-, zu 3 Gew.-% Glyceride der Linol- und zu etwa 2 Gew.-% die Glyceride der Palmitin- und der Stearinsäure enthalten.

Sojaöl enthält zu 55 bis 65 Gew.-% der Gesamtfettsäuren mehrfach ungesättigte Säuren, insbesondere Linol- und Linolensäure. Ähnlich ist die Situation beim Sonnenblumenöl, dessen typisches Fettsäurespektrum, bezogen auf Gesamtfettsäure wie folgt aussieht: ca. 1 Gew.-%

Myristin-, 3 bis 10 Gew.-% Palmitin-, 14 bis 65 Gew.-% Öl- und 20 bis 75 Gew.-% Linolsäure.

Alle obigen Angaben über die Fettsäureanteile in den Triglyceriden sind bekanntermaßen abhängig von der Qualität der Rohstoffe und können daher zahlenmäßig schwanken.

In einer besonderen Ausführungsform der Erfindung handelt es sich bei den Additiven um Umsetzungsprodukte aus der Reaktion von Di- oder Trialkanolaminen mit Alkylestern der Fettsäuregemische aus den genannten und insbesondere den bevorzugten Pflanzenölen. Erfindungsgemäß handelt es sich bei den Alkylestern der Fettsäuregemische um Methylester und/oder um Ethylester. Die Fettsäurezusammensetzung in dem Gemisch ergibt sich aus der jeweiligen nativen Fettsäurezusammensetzung des verwendeten Pflanzenöles sowie der jeweiligen Qualität des Rohstoffes aus dem die Methyl- und/oder Ethylester in bekannter Art hergestellt werden.

Im Sinne der Erfindung handelt es sich bei den zur Reaktion zu bringenden und zum gewünschten Umsetzungsprodukt führenden Di- oder Trialkanolaminen um Alkanolamine mit Alkanolresten von 1 bis 4 C-Atomen, bevorzugt handelt es sich um Ethanolamine. Die Di- oder Trialkanolamine können Alkanolreste der gleichen oder unterschiedlichen Anzahl von C-Atomen haben, bevorzugt ist jedoch die Umsetzung mit Aminen die zwei oder drei der gleichen Alkanolreste haben, insbesondere bevorzugt ist die Umsetzung von Diethanolamin oder von Triethanolamin.

Die in den erfindungsgemäßen Treibstoffzusammensetzungen enthaltenen Additive als Umsetzungsprodukte aus der Reaktion von Di- oder Trialkanolaminen mit Pflanzenölen oder mit Alkylestern der Fettsäuregemische aus Pflanzenölen kennzeichnen sich bevorzugt dadurch aus, dass die Reaktion solange durchgeführt wird, bis das Umsetzungsprodukt klar ist und sich das Produkt bei  $-10$  bis  $-20$  °C in 1%iger Mischung klar in Diesel löst. Des weiteren sind neben einer Filtration keine weiteren Aufarbeitungsschritte notwendig.

Erfindungsgemäß sind solche Treibstoffzusammensetzungen bevorzugt, bei denen das Volumenverhältnis (v/v) Dieselöl zu Additiv im Bereich von 1000 : 0,5 bis 1000 : 50, und vorzugsweise von 1000 : 1 bis 1000 : 50 liegt. Eine bevorzugte Ausführungsform beansprucht eine Treibstoffzusammensetzung, bestehend aus 90 bis 98 Gew.% Dieselöl, 1 bis 8 Gew.% trockenem Ethanol und 0,1 bis 1,5 Gew.-%, vorzugsweise 0,5 bis 1,0 Gew.-% eines Additivs aus dem Umsetzungsprodukt aus der Reaktion von Di- oder Trialkanolaminen mit Pflanzenölen oder mit Alkylestern der Fettsäuregemische aus Pflanzenölen.

Ein weiterer Gegenstand der Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Dieselöl/Ethanol-Mischungen, wobei man entweder Dieselöl und trockenes Ethanol vermischt und anschließend ein Additiv bei dem es sich um ein Umsetzungsprodukt aus der Reaktion von Di- oder Trialkanolaminen mit Pflanzenölen oder mit Alkylestern der Fettsäuregemische aus Pflanzenölen handelt, in Mengen von maximal 0,5 bis 5,0 Gew.-% zusetzt, oder zunächst das Additiv bei dem es sich um ein Umsetzungsprodukt aus der Reaktion von Di- oder Trialkanolaminen mit Pflanzenölen oder mit Alkylestern der Fettsäuregemische aus Pflanzenölen handelt, in Mengen von maximal 0,1 bis 5,0 Gew.-% in trockenem Ethanol mischt und dann dem Diesel zusetzt.

Die Verwendung der erfindungsgemäßen Additive erlaubt es, preiswert Mischungen aus Treibstoffen mit trockenem Ethanol, vorzugsweise Dieselöl mit trockenem Ethanol, herzustellen. Dabei werden vorzugsweise max. 0,5 bis 1,5 Gew.% an Additiv dem Dieselöl/Ethanol-Gemisch zugesetzt. Die gesamte Treibstoffzusammensetzung ist vorzugsweise trocken, d.h. der Wasseranteil der gesamten Treibstoffzusammensetzung sollte unter 0,2 Vol.-%, vorzugsweise unter 0,1 Vol.-% liegen.

Die Wirkung der Additive ist dahingehend zu verstehen, dass sie eine lösungsvermittelnde Wirkung aufweisen. Dementsprechend wird auch die Verwendung von Umsetzungsprodukten aus der Reaktion von Di- oder Trialkanolaminen mit Pflanzenölen oder mit Alkylestern der Fettsäuregemische aus Pflanzenölen als Lösungsvermittler für ethanolhaltige Dieseltreibstoffe beansprucht.

---

---

## Beispiele

---

### Herstellbeispiel 1

Umsetzung Sojaöl mit Triethanolamin (Umsetzungsverhältnis 1mol Öl : 1,5 mol Amin)  
772,4g Sojaöl und 199,3g Triethanolamin wurden in einem 2-ltr. Dreihalskolben eingewogen und unter Stickstoffüberleitung und rühren auf 150°C erhitzt. Die Temperatur wurde dann innerhalb 1h nochmals bis auf 200°C erhöht. Bei 200°C wurde 4h lang gerührt. Die erstmals trübe Mischung wurde dabei nach 3h klar. Nach den 4h wurde auf 80°C abgekühlt, 0,1% Filterhilfsmittel hinzugefügt und über Seitz filtriert. Das Produkt ist hellbraun klar und flüssig.

Produkte mit anderen Umsetzungsverhältnissen wurden analog hergestellt.

### Herstellbeispiel 2

Umsetzung von Sojaöl mit Diethanolamin (Umsetzungsverhältnis 1 mol Öl : 1,5 mol Amin)  
867,2g Sojaöl wurden mit 157,7g Diethanolamin in einem 2-ltr. Dreihalskolben eingewogen. Unter Rühren und Stickstoffüberleitung wurde auf 160°C erhitzt. Bei dieser Temperatur wurde 3h lang gerührt. Nach etwa 2h wurde dabei die trübe Ausgangsmischung klar. Nach 3h wurde auf 80°C abgekühlt und unter Zugabe von 0,1% Filterhilfsmittel über Seitz filtriert. Das Produkt ist hellbraun, klar und flüssig.

Produkte mit anderen Umsetzungsverhältnissen wurden analog hergestellt.

---

### Herstellbeispiel 3

Umsetzung von Sojafettsäuremethylester mit Triethanolamin (Umsetzungsverhältnis 3 mol Me-ester : 3 mol Amin)

872,1g Sojafettsäuremethylester und 447,6g Triethanolamin wurden in einem 2-ltr. Dreihalskolben eingewogen und unter Stickstoffüberleitung und rühren auf 190°C erhitzt. Die Temperatur wurde dann innerhalb 1h nochmals bis auf 230°C erhöht. Bei 230°C wurde 3h lang gerührt. Die erstmals trübe Mischung wurde dabei nach 2h klar. Nach den 3h wurde auf 80°C abgekühlt, 0,1% Filterhilfsmittel hinzugefügt und über Seitz filtriert. Das Produkt ist braun klar und flüssig.



Beispiel 4:

Die untenstehende Tabelle liefert einige physikalische Daten der Umsetzungsprodukte

Die Wirkung der erfindungsgemäßen Additive wurde unter anderem mit dem Cold Filter Plugging Point -Test (CFPP) nach EN 116 : 1997 überprüft.

Gemäß dem Testverfahren wurde dazu der additierte Treibstoff in einer Mischung aus 94% Diesel LS, 5% Ethanol und 1% Umsetzungsprodukt schrittweise auf - 30 °C abgekühlt, wobei im Temperaturabstand von 1 °C jeweils eine Probe genommen und bei Unterdruck von 2 kPa durch eine genormte Filtereinrichtung gesaugt wurde. Der angegebene Temperaturwert entspricht dann der Temperatur, bei der der Brennstoff in einer festgelegten Zeit nicht mehr durch die Filtereinrichtung fließen kann.

Produkt	Umsetzungsverhältnis (Equivalent) Öl/Methylester : DEA/TEA : Ethylenglycol	SZ	VZ	AZ	Wasser (%)	Dichte (20°C) (g/cm³)	PourPoint (°C)
Umsetzung Sojamethylester mit DEA	1 : 1				0,08		-3
Umsetzung Sojamethylester mit TEA	1 : 1	2,9	133	134	0,26	0,960	0
Umsetzung Sojaöl mit DEA	3 : 1,5	0,7	162	2,4	0,10	0,955	-6
Umsetzung Sojaöl mit TEA	3 : 1,5	0,7	162	72	0,05	0,956	0
Umsetzung Sojaöl mit TEA/Ethylenglycol	3 : 1 : 1	2,3	156	50,1	0,21	0,954	-2
Umsetzung Sojaöl mit TEA	3 : 2,2	1,2	139	102		0,968	1
Umsetzung Sojaöl mit TEA	3 : 0,8	0,9	171	39		0,932	-2
Umsetzung Sojaöl mit DEA	3 : 2,2	5,2	146	5,2		0,967	-14
Umsetzung Sojaöl mit DEA	3 : 0,8	1,1	173	4,6		0,939	-8
Umsetzung Sojaöl mit TEA/Ethylenglycol	3 : 2 : 1	1,9	135	90		0,971	-2
Umsetzung Sojamethylester mit TEA/ Ethylenglycol	3 : 2 : 1	2,1	135	92	0,23	0,962	-3

## Fortsetzung der Tabelle:

Produkt	Refraktion (n <sub>20D</sub> )	Viskosität (40°C) (mm²/s)	CFPP * (°C)	Lagerstabilität *			Wasseraufnahme * +0,1 % Wasser
				0°C	50°C	20°C	
Umsetzung Sojamethylester mit DEA			-20	klar	klar	klar	klar
Umsetzung Sojamethylester mit TEA	1,4757	43,1	-23	klar	klar	klar	klar
Umsetzung Sojaöl mit DEA	1,4808	111,0	-22	klar	klar	klar	klar
Umsetzung Sojaöl mit TEA	1,4758	51,7	-20	klar	klar	klar	klar
Umsetzung Sojaöl mit TEA/Ethylenglycol	1,4730		-21	klar	klar	klar	klar
Umsetzung Sojaöl mit TEA	1,4760	61,9	-22	klar	klar	klar	klar
Umsetzung Sojaöl mit TEA	1,4745	38,9	-21	klar	klar	klar	klar
Umsetzung Sojaöl mit DEA	1,4826	208,0	-21	klar	klar	klar	klar
Umsetzung Sojaöl mit DEA	1,4778	61,3	-22	klar	klar	klar	klar
Umsetzung Sojaöl mit TEA/Ethylenglycol	1,4740	59,0	-22	klar	klar	klar	klar
Umsetzung Sojamethylester mit TEA/ Ethylenglycol	1,4735		-21	klar	klar	klar	klar

DEA = Diethanolamin; TEA = Triethanolamin;

SZ = Säurezahl; VZ = Verseifungszahl; AZ = Aminzahl

CFPP = Cold Filter Plugging Point

## Patentansprüche

1. Treibstoffzusammensetzung, frei von alkoxylierten Verbindungen, enthaltend mindestens 90 Gew.-% eines Treibstoffs auf Kohlenwasserstoffbasis, 0,5 bis 9 Gew.-% trockenem Ethanol und 0,1 bis 5 Gew.-% eines Additives bei dem es sich um ein Umsetzungsprodukt aus der Reaktion von Di- oder Trialkanolaminen mit Pflanzenölen oder mit Alkylestern der Fettsäuregemische aus Pflanzenölen handelt.
2. Treibstoffzusammensetzung nach Anspruch 1 **dadurch gekennzeichnet**, dass als Treibstoff Dieselöl enthalten ist.
3. Treibstoffzusammensetzung nach Anspruch 1 oder 2 **dadurch gekennzeichnet**, dass die Pflanzenöle Fettsäureester enthalten, die einfach oder mehrfach ungesättigte Alkylreste mit 11 bis 21 C-Atomen enthalten.
4. Treibstoffzusammensetzung nach Ansprüchen 1 bis 3 **dadurch gekennzeichnet**, dass die Pflanzenöle ausgewählt sind aus der Gruppe, die gebildet wird von Sojaöl, Rapsöl, Sonnenblumenöl, Erdnussöl, Leinöl, Olivenöl, Ricinusöl, Palmöl und Distelöl.
5. Treibstoffzusammensetzung nach Ansprüchen 1 bis 4 **dadurch gekennzeichnet**, dass es sich bei den Alkylestern der Fettsäuregemische aus den Pflanzenölen um Ethylester und/oder Methylester handelt.
6. Treibstoffzusammensetzung nach Ansprüchen 1 bis 6 **dadurch gekennzeichnet**, dass es sich bei den Di- oder Trialkanolaminen um Alkanolamine mit Alkanolresten von 1 bis 4 C-Atomen handelt und die Alkanolreste unabhängig voneinander die gleiche oder unterschiedliche Anzahl C-Atome haben.
7. Treibstoffzusammensetzung nach Ansprüchen 1 bis 6 **dadurch gekennzeichnet**, dass das Dieselöl Biodiesel enthält.

8. Treibstoffzusammensetzung nach Ansprüchen 1 bis 7 **dadurch gekennzeichnet**, dass die Reaktion die zum Additiv führt, solange durchgeführt wird, bis das Umsetzungsprodukt klar ist und sich das Produkt bei  $-10$  bis  $-20$  °C in 1%iger Mischung klar in Diesel löst.
9. Treibstoffzusammensetzung nach Ansprüchen 1 bis 8 **dadurch gekennzeichnet**, dass das Umsetzungsprodukt neben einer Filtration keiner weiteren Aufarbeitung unterzogen wird.
10. Treibstoffzusammensetzung nach Ansprüchen 1 bis 9 **dadurch gekennzeichnet**, dass das Volumenverhältnis (v/v) Dieselöl : Additiv im Bereich von 1000 : 0,5 bis 1000 : 50, vorzugsweise von 1000 : 1 bis 1000 : 50 liegt.
11. Treibstoffzusammensetzung, bestehend aus 90 bis 98 Gew.-% Dieselöl, 1 bis 8 Gew.-% trockenem Ethanol und 0,1 bis 1,5 Gew.-% vorzugsweise 0,5 bis 1,0 Gew.-% eines Additivs gemäß der Ansprüche 1 bis 10.
12. Verfahren zur Herstellung von Dieselöl/Ethanol-Mischungen, wobei man entweder
  - a) Dieselöl und trockenes Ethanol vermischt und anschließend ein Additiv bei dem es sich um ein Umsetzungsprodukt aus der Reaktion von Di- oder Trialkanolaminen mit Pflanzenölen oder mit Alkylestern der Fettsäuregemische aus Pflanzenölen handelt, in Mengen von maximal 0,1 bis 5,0 Gew.-% zusetzt, oder
  - b) zunächst das Additiv bei dem es sich um ein Umsetzungsprodukt aus der Reaktion von Di- oder Trialkanolaminen mit Pflanzenölen oder mit Alkylestern der Fettsäuregemische aus Pflanzenölen handelt, in Mengen von maximal 0,1 bis 5,0 Gew.-% in trockenem Ethanol mischt und dann dem Diesel zusetzt.

13. Verwendung von Umsetzungsprodukten aus der Reaktion von Di- oder Trialkanolaminen mit Pflanzenölen oder mit Alkylestern der Fettsäuregemische aus Pflanzenölen als Lösungsvermittler für ethanolhaltigen Dieseltreibstoff.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/EP2005/002210

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>		
IPC 7	C10L1/02	C10L1/22 C10L1/18 C10L10/00
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 C10L		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal, WPI Data, PAJ, COMPENDEX, INSPEC		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	GB 2 336 119 A (* COVAL TECHNOLOGIES LIMITED) 13 October 1999 (1999-10-13) page 1, lines 23-26; claims 1,6,7	1-13
X	US 2004/040202 A1 (BONGART FRANK ET AL) 4 March 2004 (2004-03-04) paragraphs '0025!, '0040!, '0044!, '0045!; claims 1-6,15-19	1-13
A	US 6 589 302 B1 (DEROSA THOMAS F ET AL) 8 July 2003 (2003-07-08) column 7, lines 19-31; claims 1,2,5,6,11,12	1-13
A	US 2002/178650 A1 (IKURA MICHIO ET AL) 5 December 2002 (2002-12-05) abstract	1-13
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.		
* Special categories of cited documents : *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance *E* earlier document but published on or after the international filing date *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. *Z* document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search  23 May 2005		Date of mailing of the international search report  02/06/2005
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer  Bertrand, S

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP2005/002210

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
GB 2336119	A	13-10-1999	AU 3430499 A WO 9952996 A1	01-11-1999 21-10-1999
US 2004040202	A1	04-03-2004	AU 2378702 A BR 0115205 A CA 2433464 A1 CN 1526005 A EP 1334171 A2 WO 0238707 A2 JP 2004520453 T	21-05-2002 03-02-2004 16-05-2002 01-09-2004 13-08-2003 16-05-2002 08-07-2004
US 6589302	B1	08-07-2003	NONE	
US 2002178650	A1	05-12-2002	CA 2377464 A1	03-11-2002

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2005/002210

<b>A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES</b> IPK 7 C10L1/02 C10L1/22 C10L1/18 C10L10/00		
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK		
<b>B. RECHERCHIERTE GEBIETE</b> Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole ) IPK 7 C10L		
Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen		
Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) EPO-Internal, WPI Data, PAJ, COMPENDEX, INSPEC		
<b>C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN</b>		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	GB 2 336 119 A (* COVAL TECHNOLOGIES LIMITED) 13. Oktober 1999 (1999-10-13) Seite 1, Zeilen 23-26; Ansprüche 1,6,7	1-13
X	US 2004/040202 A1 (BONGART FRANK ET AL) 4. März 2004 (2004-03-04) Absätze '0025!, '0040!, '0044!, '0045!; Ansprüche 1-6,15-19	1-13
A	US 6 589 302 B1 (DEROSA THOMAS F ET AL) 8. Juli 2003 (2003-07-08) Spalte 7, Zeilen 19-31; Ansprüche 1,2,5,6,11,12	1-13
A	US 2002/178650 A1 (IKURA MICHIO ET AL) 5. Dezember 2002 (2002-12-05) Zusammenfassung	1-13
<input type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen <input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie		
* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : *A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist *E* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist *L* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) *O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht *P* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist *T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist *X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden *Y* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist *&* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist		
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche 23. Mai 2005		Absendedatum des internationalen Recherchenberichts 02/06/2005
Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Bevollmächtigter Bediensteter Bertrand, S

# INTERNATIONALE RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2005/002210

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
GB 2336119	A	13-10-1999	AU 3430499 A	01-11-1999
			WO 9952996 A1	21-10-1999
US 2004040202	A1	04-03-2004	AU 2378702 A	21-05-2002
			BR 0115205 A	03-02-2004
			CA 2433464 A1	16-05-2002
			CN 1526005 A	01-09-2004
			EP 1334171 A2	13-08-2003
			WO 0238707 A2	16-05-2002
			JP 2004520453 T	08-07-2004
US 6589302	B1	08-07-2003	KEINE	
US 2002178650	A1	05-12-2002	CA 2377464 A1	03-11-2002